

強磁性トンネル接合の伝導特性および応用に関する研究

著者	佐藤 雅重
号	3188
発行年	2003
URL	http://hdl.handle.net/10097/8460

氏名	さとう まさ しげ		
授与学位	佐藤 雅重		
学位授与年月日	博士(工学)		
学位授与の根拠法規	平成16年3月25日		
研究科, 専攻の名称	学位規則第4条第1項		
学位論文題目	東北大学大学院工学研究科(博士課程)応用物理学専攻		
指導教官	強磁性トンネル接合の伝導特性および応用に関する研究		
論文審査委員	指 導 教 官 東北大学教授 宮崎 照宣		
	主査 東北大学教授 宮崎 照宣	東北大学教授 松原 史卓	
	東北大学教授 島田 寛	東北大学助教授 安藤 康夫	
	(多元物質科学研究所)		

論文内容要旨

1. 序論および目的

ハードディスクドライブ(HDD)の容量は年々高密度化しており、その容量をさらに増大させることは、今後の情報化社会のさらなる発展に不可欠である。現在の HDD の面記録密度は、数十 Gbit/in² であり、ヘッド用の読み取りセンサ材料には、スピバルブ素子が用いられている。これは、記録媒体からの漏れ磁界に応じて電気抵抗が7%程度変化する金属多層膜材料である。しかし、記録密度がさらに増大し記録ビットが小さくなると、十分な出力が得られなくなる。出力の低下を補うためには、より大きな抵抗変化を示す磁気抵抗効果材料が必要となる。強磁性トンネル接合は、強磁性層/絶縁層/強磁性層の構造を有する接合であり、両磁性層の磁化の角度に応じてトンネル抵抗が大きく変化することが理論的に予想されている。理論通りに大きな抵抗変化率(TMR 比)が得ることが出来、ヘッドに適用できれば、記録密度の向上が期待できる。

しかしながら、強磁性トンネル効果は、実験的にはごく小さな TMR 比しか報告されていなかった。1995年に宮崎らによって、室温で18%のトンネル抵抗の変化が報告されたことをきっかけに、多くの研究機関で活発な研究が行われるようになったが、本研究開始当時、実用化に関する研究例はほとんどなかった。

本研究は、強磁性トンネル接合の応用に必要となる基本的特性を明らかにすると共に、磁気ヘッドに適用可能な強磁性トンネル接合を開発することを目的とする。

2. スピバルブ型強磁性トンネル接合の作製

従来、十分な再現性と安定性をもって大きな TMR 比が得られた例はほとんどなかった。その原

因として、バリアの品質が充分でなかったことが挙げられる。そこで本研究ではまず、安定な酸化アルミニウム障壁の形成条件を検討した。表面を熱酸化処理した Si ウエハー上に、十字型の接合を形成した。パターンニングにはメタルマスクを用いた。絶縁障壁には Al の酸化膜を用いた。Al を成膜した後、大気中に取り出し、所定の時間放置することで、表面を酸化させ、絶縁障壁を形成した。Si/SiO₂/Co (8.3 nm)/ Al (3.0 nm) / Co (53 nm) 接合において、磁場に依存し磁化曲線とも対応する MR 曲線が得られた。100 時間以上かけて充分酸化した抵抗の大きな接合については、10%程度の TMR 比が再現性良く得られ、経時変化も小さく非常に安定であることが分かった。短時間の酸化ではリークパスとなっていた不純物部分が長時間の酸化によりある程度絶縁化されるために、良好な接合が得られたものと考えられる。

次に、この接合を磁気ヘッドに応用するために、磁化過程の制御を試みた。従来報告されていた接合はすべて 2 つの磁性層の保磁力に差をつけた、いわゆる保磁力差型であったが、本研究では、片側の磁性層の磁化を隣接する反強磁性体との交換結合で固着させる、スピバルブ構造を、強磁性トンネル接合において初めて導入した。接合構造は、NiFe/ CoFe/ Al-O/ CoFe/ NiFe/ FeMn/ NiFe とし、安定な障壁を得るために、大気中で 240 時間の酸化を行った。図 1 に、この接合の磁気抵抗曲線を示す。零磁場近傍で、NiFe/CoFe 層の反転に相当する急峻な抵抗変化を有し、NiFe/FeMn 界面による 45 Oe の交換結合磁界を有する明瞭なスピバルブ特性を示した。界面に分極率の高い Co を用いたことで TMR 比は従来のスピバルブより大きな 10%を得た。

以上より、安定な接合を再現性良く作製できるようになり、また、初めてスピバルブ構造を強磁性トンネル接合に導入し、応用に向けての大きなポテンシャルを示した。

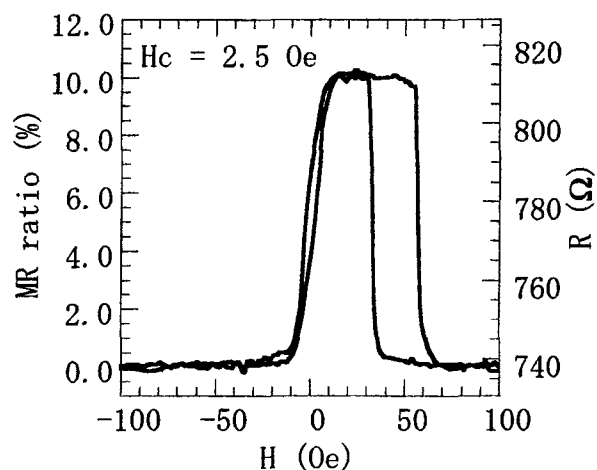


図 1 スピバルブ構造を導入した接合の磁気抵抗曲線

3. 強磁性トンネル接合の熱処理効果

ヘッドプロセスでは 200~300℃での熱処理が不可欠であるが、強磁性トンネル接合において、熱処理を施した場合の特性の変化や耐熱性についての報告はなく、プロセス適合性についての知見もなかった。そこで本研究では、初めて強磁性トンネル接合の熱処理効果を検討した。試料として、Si(100)/SiO₂/NiFe (17.1 nm)/Co (3.3 nm)/ Al-O (0.9~2.1 nm)/ Co (3.3 nm)/ NiFe (17.1 nm)/

FeMn (45 nm)/ NiFe (8.6 nm)の構造を有する接合を用いた。Al の表面は、大気中で 450~700 時間の酸化を行い絶縁層を形成した。これらの試料について、真空磁場中熱処理を行い、抵抗率および TMR 比の熱処理温度依存性を測定した。

その結果、トンネル抵抗は熱処理温度とともに増大する傾向を示した。一方、TMR 比は、図 2 に示す通り、250℃程度までは大きな変化を示さないが、300℃の熱処理で急激にエンハンスする現象を発見した。図中の各記号はすべて同一条件の接合であり、中には耐熱性の低いものも存在するが、多くの接合において TMR 比の増加が見られた。300℃の熱処理を施すことにより、良好なスピンバルブ特性を有しながら、当時最大の 24%という TMR 比を得た。このような TMR 比のエンハンスは、熱処理により酸素が拡散し、良好な酸化アルミニウムバリアが形成されるためと考えられる。

Al の酸化条件を変えた試料について熱処理効果を測定した結果、酸化強度や界面の状態によって、熱処理効果も異なるという知見を得、トンネル接合の応用において、熱処理が重要であることをいち早く示した。また、耐熱性に関しては、現在のヘッドプロセスに、適合性を有することを明らかにした。

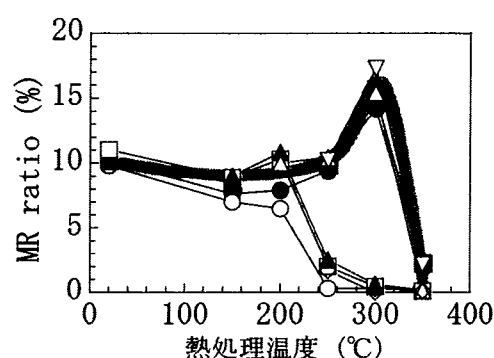


図 2 MR比の熱処理温度依存性

4. 高 TMR 比・低抵抗化とヘッド適用

強磁性トンネル接合を実際にヘッドに応用するために、大きな出力を有するとともに、高速転送を実現するために低い抵抗値が必要である。まず出力を大きくするために、磁性層の組成を CoFe とし、組成を最適化した。その結果、Fe 組成 26at%付近において 42%の抵抗変化を得た。次に、トンネル抵抗を低減させるための条件として、下地層の検討を行った。下地として、Ta, Cr/Au, Cu, CuAl, Al を用い、Si/SiO₂/下地層/ NiFe (4 nm)/ CoFe (3 nm)/Al-O /CoFe (2.5 nm)/ IrMn (15 nm)/ Au (20 nm)の接合を作製した。下地の表面状態と TMR 特性との関係性を評価した結果、下地の平坦性が悪くなると、TMR 比も減少することが分かった。また、抵抗率の異なる接合の温度変化測定から、低抵抗な接合においては、不純物等によるリーク電流が TMR 比を減少させる要因であることが明らかとなった。

以上の結果をふまえて、超高真空スパッタ装置を用いて、Al 膜厚および酸化条件を変えて低抵抗の接合を作製した。下地の平坦化と Al の薄膜化、酸化強度の低減により、Cr/Au 下地上で抵抗率 $8 \Omega \mu \text{m}^2$ 程度で、約 20%の TMR 比を有する接合を得た。また、バリア材料として、従来用いられ

ている酸化アルミニウムに代わって、窒化アルミニウムを用いることで、TMR 比は若干小さいものの、さらに低抵抗化出来る可能性を示した。

これらの知見をもとに、ヘッドに適用するための各種条件を最適化した。図3に、本研究における TMR 特性の変化をまとめた。最終的には、約 $5 \Omega \mu\text{m}^2$ 以下で 15%以上の TMR 比を有する強磁性トンネル接合膜を得た。これは、100 Gbit/in² クラスの次世代の読み取りヘッドに適用可能な特性であり、実際にヘッド試作に適用した。その結果、再生波形を得ることが出来、実際にヘッドに適用できる可能性を十分に有することを示した。

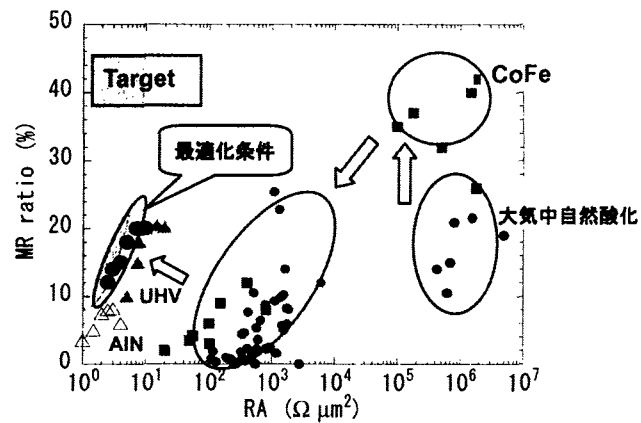


図3 低抵抗化の推移

5. 総括

本研究では、強磁性トンネル接合を磁気ヘッドに応用する際に重要と考えられる基本的特性を明らかにすると共に、磁気ヘッド用強磁性トンネル接合の開発を行った。その結果、

強磁性トンネル接合にスピバルブ構造を初めて導入し、明瞭なスピバルブ特性を有する MR 曲線を得た。また、熱処理効果に関する検討を初めて行い、300℃の熱処理を施すことで磁気抵抗効果がエンハンスする現象を発見した。

さらに、強磁性トンネル接合をヘッドに適用するために、高出力・低抵抗を有する接合の開発を行った。真空度、材料の純度および下地の平坦性が、低抵抗化に重要であることを示し、接合作製条件を最適化した結果、抵抗率 $5 \Omega \mu\text{m}^2$ 以下で、15%以上の TMR 比を有する強磁性トンネル接合を開発することが出来た。また、この接合を用いて実際に磁気ヘッドを試作し、再生波形を得ることが出来た。

以上をまとめると、本研究によって、当時応用に関する検討がほとんど行われていなかった強磁性トンネル接合について、いち早く応用に関する検討を行うとともに磁気ヘッドを想定した開発を行った。その結果、100 Gbit/in² クラスの次世代の読み取りヘッドに適用可能性を有するレベルの強磁性トンネル接合を開発し、実際にヘッド試作に適用することが出来た。

論文審査結果の要旨

近年、強磁性トンネル接合のスピントネル磁気抵抗効果が内外に於いて精力的に行われている。これはこの現象の物理的興味に加えて、トンネル接合を用いた MRAM (Magnetoresistive random access memory) または、HDD (Hard disk drive) の再生磁気ヘッドといった産業に結びつく可能性があるためである。本研究は室温での大きな強磁性トンネル磁気抵抗効果が報告された当初からこれを HDD 用再生磁気ヘッドとして用いるために必要な基本的特性の検証および改善を行い、実際に再生ヘッドを試作するに至る成果をまとめたもので、全 5 章よりなる。

第 1 章は序論および目的で、HDD の面記録密度と関わる技術との関係およびトンネル磁気抵抗効果についてまとめ、最後に研究の具体的目的を述べている。

第 2 章では強磁性トンネル接合 (MTJ) を磁気ヘッドに用いるための技術の一つとして金属人工格子を用いた再生ヘッドにヒントを得、スピバルブ型強磁性トンネル接合を作製した結果を記述している。具体的な積層構造は NiFe/CoFe/Al-O /CoFe/NiFe/FeMn/NiFe 構造であり、反強磁性の FeMn が CoFe/NiFe 層の磁化をピン止めする仕組みになっている。これにより室温で約 10% の磁気抵抗変化率 (MR 比) でしかも、MR vs H の曲線が再生磁気ヘッドに適したものを作製することができた。このスピバルブ型 MTJ は世界に先駆けて行った成果であり、MTJ の応用に向けての研究をより確実なものとする事になった。

第 3 章では強磁性トンネル接合の熱処理効果について記述している。ヘッドプロセスでは 200~300℃ の熱処理が不可欠であるため、MTJ が耐熱性を有することは重要である。本章では 300℃ までの熱処理により MTJ の TMR 比がエンハンスすることを見出した。300℃ で熱処理後の TMR 比は 24% と当時の値としては最大であった。この研究がトリガとなり以後 MTJ の TMR 比を向上させるために熱処理は不可欠の技術となっている。

第 4 章では大容量で高速転送が可能なヘッドを開発するため、低抵抗で高 TMR 比の TMJ 材料の作製を種々の観点から検討した結果を記述している。電極である磁性層の組成、磁性層の下地層の物質の表面状態、障壁材料およびスパッタ雰囲気は TMR 比と抵抗に及ぼす影響について調べ、Si/SiO₂/Cr/Au/NiFe(4nm)/CoFe(3nm)/Al-O(0.8 nm)/CoFe(2.5nm)/IrMn (15nm)/Au(20nm) の接合で抵抗が $8\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ 、TMR 比が 20% の MTJ の作製に成功した。これらの成果をもとに更にヘッドに適用するための各層の厚みなどを最適化し、最終的には抵抗が $5\Omega \cdot \mu\text{m}^2$ で TMR 比が 15% で 100Gbit/in² 程度の次世代の読み取りヘッドに適用可能な接合を作製し、ヘッドの試作を行った。

第 5 章は総括であり、本研究により得られた成果について要約している。

以上要するに本研究は高密度磁気記録対応の強磁性トンネル接合を開発し、実際にヘッドの試作を行ったものであり、最新のスピエレクトロニクス分野ならびに磁気工学の発展、ひいては応用物理学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。